

(7) 大気中二酸化窒素および揮発性有機化合物の個人曝露量調査に基づく地域の曝露特性の評価

Characterization of the exposure to the air pollutants by the survey of personal exposure to NO<sub>2</sub> and VOCs within a district

大野 浩一<sup>\*</sup>、蒲生 昌志<sup>\*\*</sup>、川本 克也<sup>\*\*\*</sup>、山本 和夫<sup>\*\*\*\*</sup>

Koichi OHNO<sup>\*</sup>, Masashi GAMO<sup>\*\*</sup>, Katsuya KAWAMOTO<sup>\*\*\*</sup>, Kazuo YAMAMOTO<sup>\*\*\*\*</sup>

ABSTRACT; Personal exposure levels to nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) and volatile organic compounds(VOCs; benzene, toluene, ethyl benzene, xylenes) in the atmosphere were measured in three districts using passive samplers. Three districts, each 5km x 5km scale, were selected for their different population densities. Twenty five households were selected as the targets in each district and the exposure levels of the father, the mother, a child, indoor and outdoor of each household were measured. It was calculated that the geometric standard deviations (GSDs) of the personal exposure levels were about 1.2 for NO<sub>2</sub> and 1.6 to 1.8 for VOCs. The GSDs among the father, the mother and the child in the same district can be regarded the same for all substances. GSDs of the father, the mother and the child were not regarded the same among three districts except NO<sub>2</sub> and benzene. In regard to the correlation of the exposures between the subjects, good correlation relationships were shown between the mother and the child and also between outdoor and indoor. On the other hand, only poor correlation relationships were observed between the father and the mother and between the father and the child.

KEYWORDS; nitrogen dioxide(NO<sub>2</sub>), volatile organic compounds(VOCs), personal exposure, passive sampler, individual variability, air pollution

## 1. はじめに

近年、微量有害大気汚染物質が問題になるにつれて、大気汚染物質の規制や管理は定量的なリスク評価に基づいて行われるべきだという考え方が有力になってきている。化学物質のリスクを評価する場合には、2種類の情報が必要である。1つは、その物質がどのような毒性を持つかという情報であり、もう一つは我々がその物質にどのくらい曝されているか(曝露量評価)ということである。毒性に関する情報は物質に固有なものであるから、実際にリスク評価を行うためには、対象地域の個人曝露量の把握が必要である。

大気からの個人曝露量を推定する際には、大気環境中濃度の測定値かあるいは濃度予測モデルによる推定値が必要である。これらの値はある地域内の汚染物質の濃度を代表する値と考えられ、その地域内濃度の空間分布や大気環境中濃度と個人曝露量との関係を把握することが曝露量推定にとって重要である。しかしながら、地域内濃度の空間構造に対する研究<sup>1)~4)</sup>と屋外濃度と個人曝露量との関係を推定するための研究<sup>5)~9)</sup>

<sup>\*</sup> 東京大学大学院 工学系研究科 都市工学専攻 (Dept. of Urban Engineering, Univ. of Tokyo)

<sup>\*\*</sup> 工業技術院 資源環境技術総合研究所(National Institute for Resources and Environment, AIST, MITI)

<sup>\*\*\*</sup> 関東学院大学 工学部 建設設備工学科

(Dept. of Architectural Environmental Engineering, Kanto Gakuin University)

<sup>\*\*\*\*</sup> 東京大学 環境安全研究センター (Environmental Science Center, Univ. of Tokyo)

は別々に行われており、この2つの研究を結びつけ地域内住民の個人曝露量を推定するためには未解明の部分が多い。

そこで本研究は、地域内に住む集団の曝露特性を検討することを目的として、個人曝露量の調査を行った。大気環境中濃度の測定値、あるいはモデルによる推定値が代表する範囲を5km四方とみなし、地域内を1km四方の地区に分割し各地区内の家庭に対する調査を行うことで、地域内の個人曝露量の特性に関する検討を行った。具体的には、家族内の「父親」・「母親」・「子供」という異なる行動パターンを想定した3種の属性に対する個人曝露量および居住家屋の屋外曝露量、室内曝露量を同時に測定することにより、曝露の個人差や各調査対象間における相関などに関する検討を行った。

曝露量調査においては、自動車などの移動排出源が主要な汚染源である二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )および微量有害大気汚染物質の中から揮発性有機化合物(VOCs)を調査対象物質とした。個人曝露量を測定する際に一般的に使用されるサンプラーとして、ポンプを利用して物質を吸引捕集するアクティブサンプラーと、ポンプを使用せずに物質の拡散・吸着の性質を利用して捕集するパッシブサンプラーがある。本研究においては、比較的廉価でありかつ携帯性に優れていることからパッシブサンプラーを用いて調査を行った。

## 2. 方法

### 2.1 調査対象地域

関東地方の中で人口密度や通勤環境など性質の異なる地域として、東京都台東区上野を含む地域(上野地域)千葉県柏市を含む地域(柏地域)、茨城県つくば市を含む地域(つくば地域)の3地域を対象地域とした(Fig. 1)。

3地域はともにJR常磐線が近くに通っており、柏地域は東京から約30km、つくば地域は約60km離れたところに位置している。

対象地域の大きさは各々約5km四方の正方形であり、各地域内の人口密度は1990年度国勢調査において、上野地域-19,000人/ $\text{km}^2$ 、柏地域-6,700人/ $\text{km}^2$ 、つくば地域-390人/ $\text{km}^2$ である。



Fig. 1 Analytical districts

### 2.2 調査対象物質および分析方法

本研究では、 $\text{NO}_2$ およびベンゼン・トルエン・エチルベンゼン・m,p-キシレン・o-キシレンの5種類のVOCsを対象物質とし、 $\text{NO}_2$ 用とVOCs用の2種類のパッシブサンプラー(以後サンプラーとする)を使用した。

個人曝露量はその人の周辺に存在する汚染質の平均濃度と比例すると仮定し、また、サンプラーへの吸着量はサンプラー周辺の平均濃度に比例するので、本研究においては個人曝露量を物質のサンプラーへの吸着量で表現する。また、室内や屋外に設置したサンプラーへの吸着量を室内曝露量・屋外曝露量と表現する。

#### (1) $\text{NO}_2$ 用サンプラー

サンプラーとして、(株)東洋濾紙製フィルターバッジ $\text{NO}_2$ (Fig. 2 左側)を用いた。このバッジ型サンプラーはバッジケース・吸収ろ紙・プレフィルターの3部分から構成されており、吸収ろ紙には20%TEA(トリエタノールアミン)が含浸してある。また、はっ水性のプレフィルターにより風雨の影響を軽減する工夫がなされている<sup>10)</sup>。

分析はサンプラー付属の取扱説明書に準拠した方法<sup>10)</sup>で行った。概要としては、まず吸収ろ紙を発色液に浸し40分程度放置した後、薄紫色に発色したところで、波長545nmにおける吸光度を測定した。

サンプラーの精度については、取扱説明書<sup>11)</sup>によると、風速 0~4m/s、湿度 40~80RH%において±30%との値が示されているが、既報<sup>12)</sup>において、同日・同一気象条件下で測定したバッジ間の変動係数は最大で 8.7%であったことが示されている。また、松本ら<sup>2)</sup>によると同日に測定したバッジ間の測定誤差は 4~5%程度であった。

## (2) VOCs 用サンプラー

VOCs 用のサンプラーとして、ステンレス鋼製チューブ (φ5mm、90mmL、(株)パーキンエルマー製) に、吸着剤として Tenax TA を 0.25g 充填したもの (Fig. 2 右側) を使用した。チューブの両端は、o-リングを介したテフロンキャップによって封がしてある。サンプリングの際には、一方のキャップをはずし、かわりに拡散サンプリング用キャップ (パーキンエルマー(株)製) をつける。

分析方法については、サンプリングを行ったチューブをチューブ加熱・脱離方式の試料導入装置 ATD400 ((株)パーキンエルマー製) を用いて GC-MS (ガスクロマトグラフ質量分析装置) に導入し、各 VOC のサンプラーへの吸着量を定量した。GC は HP5890 シリーズⅡ、カラムには HP-5MS を使い、MS は CG-Mate ((株)日本電子製) を使用した。

VOCs の標準ガスとしては、SUPELCO 社製 TO-14 芳香族 (N<sub>2</sub> ベース、各ガス 100ppb 混合) を用いた。この標準ガスをポンプを用いてサンプルチューブに一定量吸着させる方法で、検量線を作成した。

このサンプラー間の測定誤差は、同日の同一気象条件下に行った事前の調査<sup>12)</sup>において、ベンゼンに対しては変動係数で 7%、ベンゼン以外の測定物質ではおおむね 1~3%であった。また Ole ら<sup>5)</sup>は、気象条件の異なる 14 例の野外測定の結果、変動係数はベンゼンで 26%、トルエン・キシレン類において 16%であったことを示している。

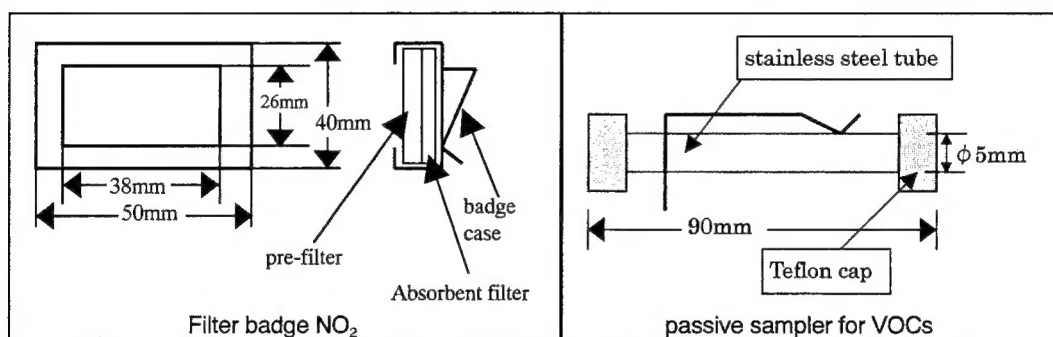


Fig. 2 Passive samplers for this survey

## 2. 3 調査対象家庭の決定

5km 四方地域内からまんべんなくサンプリングを行うために、3 地域それぞれにおいて、各対象地域を均等に縦横 5 分割し、分割した 1km 四方のそれぞれの地区の中から 1 家庭ずつの計 25 家庭に調査を依頼することとした。各家庭においては、小学校高学年から中学生の間の子供 1 人とその父親および母親の 3 人を調査対象とした (Fig. 3)。本研究においては、行動パターンにより個人の属性を特徴づけるために、「父親」として主に職場に出かけるという属性、「母親」として主に家庭内あるいは 5km 四方の地域内にいるという属性、「子供」として 5km 四方地域内の学校に行くという属性を想定した。小学校低学年生の子供は、調査器具の取り扱いを誤る可能性が考えられるために調査対象から除外した。

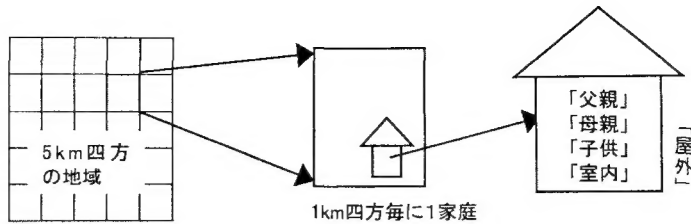


Fig. 3 Selection of the target households

調査家庭を募るために協力依頼状を郵送した。その際、各自治体の住民台帳より、台帳に記載されている生年月日をもとに「小学校高学年生から中学生の間の子供とその両親がいると思われる家庭」という条件の下で、各 1km 四方において原則 20 世帯ずつを無作為に選んだ名簿（各地域約 500 世帯からなる）を作成し、その名簿に基づいて依頼状を郵送した。

調査の依頼状には、調査の目的と内容を簡単に示し、返送用の用紙に、(a)調査への協力希望について（「協力したい」「協力してもよい」「協力できない」の3つから選択）、(b)調査対象者の調査日の行動について、(c)調査家庭の喫煙状況についてを記入してもらった。

調査協力依頼への回答状況を Table 1 に示す。回答の結果より、各 1km 四方に対し 1 家庭ずつを選択した。選択基準としては、第一に調査当日に想定した行動パターン（「父親が出勤する」、「母親は地域内で活動する」「子供は地域内の学校に通う」）が当てはまる家庭、第二に調査への協力意志が強い家庭（「協力したい」と回答した家庭）を選択した。また、対象家庭が幹線道路から原則として 50m 以上離れていることを条件とした。さらに、喫煙者のいる家庭といない家庭がほぼ同数になるように調整を行った。上記のようにして調査対象家庭を決定した後、各家庭へ調査への協力意志を電話により再確認した。

最終的に、上野地域および柏地域においては、25 地区すべてに調査対象家庭を当てはめることができたが、つくば地域においては地域内の人口のかたよりが大きく地区内人口の少なかった 2 地区では調査対象家庭を当てはめることができなかった。よって、つくば地域の調査対象家庭数は 23 となった。

Table 1. Preliminary questionnaire on willingness to participate in this survey

	柏	上野	つくば
依頼状の送付総数（不着分除く）	498	498	495
返送数	211 (42.4%)	194 (39.0%)	191 (38.6%)
「協力したい」	30	26	29
「協力してもよい」	67	47	69
協力同意世帯 計	97 (19.5%)	73 (14.7%)	98 (19.8%)
うち喫煙者のいる家庭	44 (45.4%)	33 (45.2%)	31 (31.6%)

## 2. 4 調査日程および調査家庭への依頼内容

調査はサンプラー数の制限上、3 地域で別々に行った。調査日は以下の通りである。

柏地域：1998 年 10 月 14 日（水）～10 月 16 日（金）

上野地域：1998 年 11 月 4 日（水）～11 月 6 日（金）

つくば地域：1998 年 11 月 14 日（火）～11 月 16 日（木）

調査家庭には、調査の 3 日前には調査器具と調査に関する説明書が到着するように郵送した。調査時以外のサンプラーと外気との接触を避けるために、NO<sub>2</sub> 用サンプラーは未開封の状態のまま、VOCs 用サンプラーはポリプロピレン製の容器に粒状活性炭を入れ密封した状態で配送を行った。返送の際も、サンプラーと外気との接触がないように両サンプラーを密封してもらった。

調査前日までに電話にて調査内容の理解に関する確認を行った。調査家庭には、「調査開始日の朝から連続する48時間にわたる、父親・母親・子供の3人への2種類のサンプラーの装着」および「個人曝露量調査と同期間にわたる、室内（居間）と屋外（玄関先あるいはベランダ）へのサンプラーの設置」の計5個のサンプラーの設置を依頼した。また、調査期間中の暖房器具の使用状況や喫煙本数などに関する質問を行った。

サンプラーの装着に関しては、出来る限り上半身に装着してもらうようし、授業中や勤務中などで装着が困難な場合はなるべく対象者の近くにサンプラーがあるような状態にもらった。また、入浴中はサンプラーを居間に、就寝時には枕元に置いてもらった。また、屋外へのサンプラー設置に際しては、雨が当たらない、かつ空気の滞留のない場所への設置してもらった。

調査が終了した後は、3日以内にサンプラーを返送してもらった。サンプルの分析は、VOCs に関しては調査終了から1週間以内に分析を行った。NO<sub>2</sub> に関しては、密封の上冷蔵保存しておき、VOCs 測定終了後なるべく早く分析を行った。

3. 結果

3. 1 測定サンプル数について

測定サンプル数については、原則として上野・柏地域においては、「父親」・「母親」・「子供」・「屋外」・「室内」それぞれ 25 サンプル、つくば地域においては各 23 サンプルとなる。しかし、柏地域においては2人の子供が調査中に VOCs 用サンプラーを紛失したため欠測となった。また、上野地区の VOCs の測定の際に、「母親」1 サンプルおよび「子供」1 サンプルの分析ができなかったためデータから除外した。

3. 2 調査期間の気象状況

各地域の調査期間における1日ごとの気象状況を Table 2 に示す。気象データは、最寄りの地域気象観測地点の1時間値をもとに、朝7時（平均的な調査開始時刻）から翌朝7時までのデータを1日とした。3地域とも調査時にほとんど降雨が見られなかった。また、つくば地域の調査時には気温が低かった。

Table 2 Meteorological data

地域（観測地点）	上野（東京）		柏（我孫子）		つくば（長峰）	
調査日	11/4～5	11/5～6	10/14～15	10/15～16	11/24～25	11/25～26
天気	くもり	くもり	くもり	くもり/ にわか雨	晴	快晴
平均気温（℃） （最低－最高）	19.4 (15.7－22.9)	15.4 (11.5－18.8)	19.4 (15.2－22.9)	24.4 (21.6－27.5)	7.5 (－0.2－13.4)	5.6 (－2.1－14.9)
平均風速（m/s）	3.7	4.7	0.4	3.3	2.2	2.7
積算雨量（mm）	0	0	1	3	0	0

3. 3 曝露量調査結果

今回の曝露量調査によって得られた地域ごとの曝露量について、各化合物の地域内の個人曝露量および屋外・室内曝露量はいずれも対数正規分布に従うと仮定し、Fig. 4 にその幾何平均値(Geometric Mean)をまとめて示した。地域間の各物質への曝露量は基本的に、上野地域と柏地域が同程度でつくば地域が多少低い値となっている。例外として、つくば地域の NO<sub>2</sub> 曝露量が高いこと、および柏地域のトルエン曝露量が低いことがあげられる。「父親」・「母親」・「子供」の間の平均曝露量は、概して「父親」が高く、「子供」が低くなっており、「母親」はその中間に位置している。屋外曝露量と室内曝露量については、NO<sub>2</sub> については、つくば地域を除き、屋外曝露量の方が高く、VOCs に関しては、室内曝露量の方が高い傾向が見られた。

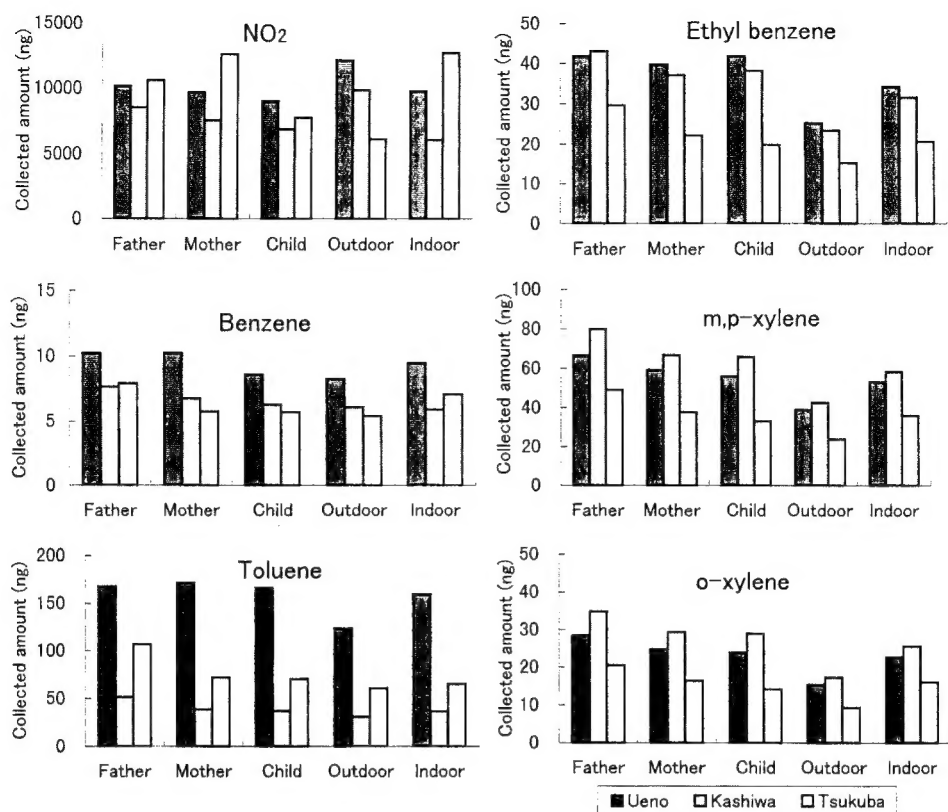


Fig. 4 Geometric mean of exposure levels

次に、曝露量の幾何標準偏差（Geometric Standard Deviation—以下 GSD）を Fig. 5 にまとめて示す。個人曝露量のばらつきについて、NO<sub>2</sub> では曝露量が大きかったつくば地域の値が大きくなっており、つくば地域を含めない場合の個人曝露量の平均 GSD=1.27 に対して、含めた場合の平均 GSD=1.41 と大きな違いをもたらしている。VOCs 各物質の個人曝露量の平均 GSD は、ベンゼン 1.60、トルエン 1.82、エチルベンゼン 1.70、m,p-キシレン 1.62、o-キシレン 1.71 となった。平均値でみると VOCs 各物質による GSD は 1.6~1.8 と比較的似たような値が示された。しかしながら個々の値をみると、上野地域における「父親」と「母親」のエチルベンゼン・キシレン類への GSD とつくば地域の「父親」のトルエンに対する GSD が他の地域や属性群と比較して大きい現象が見られた。

## 4. 考察

### 4. 1 室内空気汚染について

つくば地域の NO<sub>2</sub> に対する個人曝露量と室内曝露量が他の地域と比較して高く、またばらつきも大きいという結果を示した。同地域の調査においては、気象条件のところで述べたように調査期間の気温が低かったために、多くの家庭において暖房器具、特に石油ストーブを使用していた。このことより、石油ストーブから発生した NO<sub>2</sub> による室内汚染を受けたことが原因として考えられる。Fig. 6 に各物質の屋外曝露量と室内曝露量の関係を両軸を対数にとった散布図で示す。つくば地域の NO<sub>2</sub> に関して、屋外曝露量と室内曝露量との間の相関が全く見られないことも、暖房器具（特に石油ストーブ）による室内汚染の影響を示唆している。

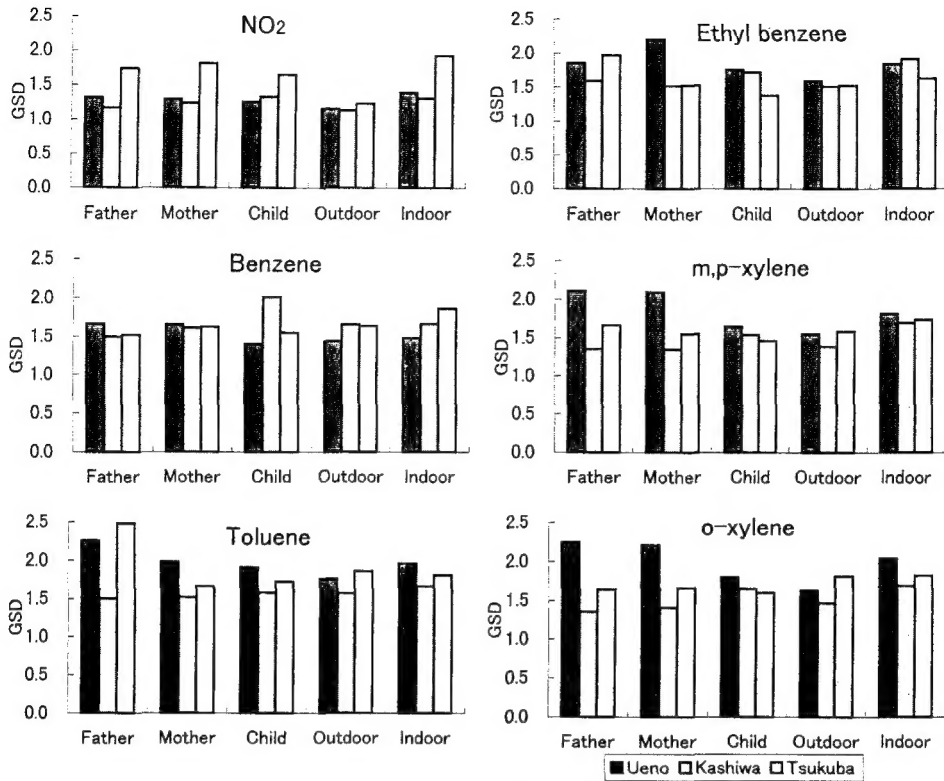


Fig. 5 Geometric Standard Deviation (GSD) of exposure levels

また、VOCs に関しては、屋外曝露量よりも室内曝露量の方が高いという傾向が見られた。このことは、室内に汚染源が存在すること示唆している。トルエン・キシレン類に関しては建材の接着剤や塗料に含まれている<sup>13)</sup>ので、これらが室内空気汚染の一因である可能性がある。

そのほかに室内空気汚染をもたらす原因として、喫煙の影響が考えられる。本調査においては、協力を希望した家庭の半数近くが家族内に喫煙者のいる家庭であったので、喫煙者のいる家庭としない家庭の割合がほぼ均等になるように選んだ。今回の調査では、喫煙者のいる家庭としない家庭との間に顕著な差は見られなかった。これは、タバコ煙の室内空気汚染の主要な原因物質が、一酸化炭素、ホルムアルデヒドや臭気成分、またベンゾ(a)ピレン等の粒子状物質であり<sup>14)</sup>、今回の調査対象とした NO<sub>2</sub> や VOCs については有意な差が出るほど喫煙が室内汚染源とはならなかったものと考えられる。

#### 4. 2 個人曝露量の GSD について

個人曝露量の同一地域における属性(「父親」・「母親」・「子供」)の分散および地域間の同一属性における分散が等しいと見なせるかどうかを検討するために、ハートレイの等分散検定<sup>15)</sup>を行った。Table 3 に検定結果を示す。同じ地域内においては属性が異なっても分散はおおむね等しいと見なせる。

一方、同じ属性においては、地域が異なっても分散が等しいかどうかであるが、NO<sub>2</sub> については暖房器具の影響が示唆されたつくば地域を除いた場合は等しいと考えられた。またベンゼン・エチルベンゼンにおいても3地域の分散が等しいと見なせた。

しかしながら、トルエン・キシレン類については「子供」は3地域の分散が等しいと言えるが、「父親」「母親」の分散には地域差があるという結果が示された。Fig.5 によると、これらの物質の上野地域にお

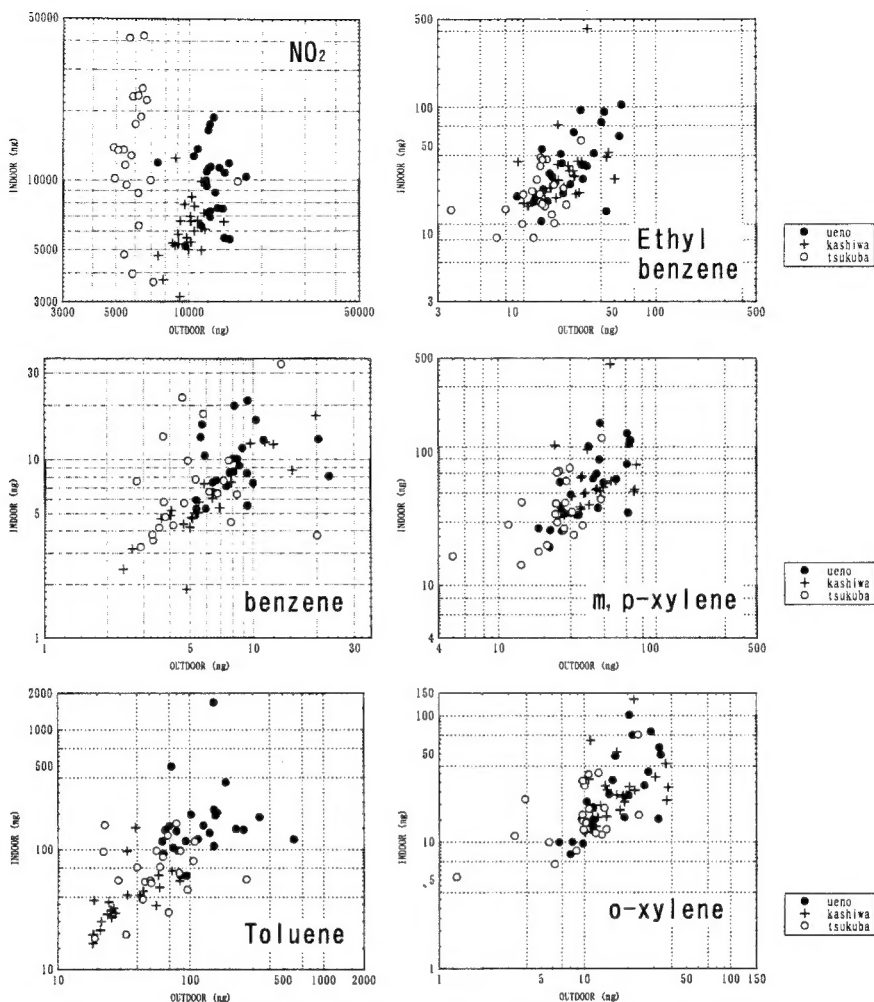


Fig. 6 Relationship between outdoor and indoor measurements (logarithmic axes)

Table 3 Equality of GSDs of individual exposure levels (result of the Hartley F-max statistic)

物質名	父・母・子間の等分散性						地域間の等分散性					
	上野		柏		つくば		父親		母親		子供	
	GSD平均	結果	GSD平均	結果	GSD平均	結果	GSD平均	結果	GSD平均	結果	GSD平均	結果
NO <sub>2</sub>	1.30	○	1.25	△	1.74	○	1.39	×	1.44	×	1.41	□
NO <sub>2</sub> (つくば地域除く)	—	—	—	—	—	—	1.24	○	1.27	○	1.30	○
Benzene	1.57	○	1.69	△	1.56	○	1.55	○	1.63	○	1.63	□
Toluene	2.04	○	1.53	○	1.92	△	2.03	×	1.71	○	1.73	○
Ethyl Benzene	1.92	○	1.60	○	1.60	□	1.80	○	1.72	△	1.60	△
m,p-xylene	1.93	○	1.41	○	1.55	○	1.68	×	1.64	×	1.54	○
o-xylene	2.08	○	1.47	○	1.63	○	1.71	×	1.73	×	1.68	○

凡例) ○: 等分散検定の有意水準5%で仮定が棄却されない(分散が異なるとは言えない)

△: 有意水準2.5%においては棄却されない

□: 有意水準1%においては棄却されない

×: 有意水準1%においても棄却される(グループ間の分散が異なる)



る分散(GSD)が「父親」「母親」ともおおよそ2.1前後と柏・つくば地域におけるGSDがほぼ1.5前後であるのに比べて分散が大きい傾向がみられた。しかしながら、屋外および室内曝露量の分散は、上野地域と柏・つくば地域の間に大きな違いは見られないため、「父親」「母親」の自宅滞在時間とその他職場などでの曝露量や滞在時間など、行動の個人差が影響している可能性がある。

#### 4. 3 曝露量の相関について

各家庭における曝露の特徴を調べるために、各対象間(「父親」・「母親」・「子供」・「屋外」・「室内」)の物質毎の相関係数を求めた。相関係数の算出は、曝露量を対数変換した値に対して行った。各物質毎の相関係数をTable 4に示す。NO<sub>2</sub>に関しては、つくば地域における暖房器具の影響を考慮して、つくば地域を除いたものと含めたものの両方について求め、以下の議論はつくば地域を除いたものに基づいて行う。

すべての物質において、「父親」と「母親」および「父親」と「子供」の相関係数よりも「母親」と「子供」の間の相関係数が高いことが示された。これは、「子供」と「母親」が「父親」と比較して活動範囲や活動パターンが似ているためであろう。

「母親」と「子供」に関しては、個人曝露量がNO<sub>2</sub>においては室内曝露量と $r=0.51\sim0.67$ 程度の相関、その他の物質においては屋外・室内曝露量両方と $r=0.51\sim0.85$ 程度の相関があるという結果が示された。一方「父親」に関しては、室内曝露量との相関は $r=0.40\sim0.70$ と比較的高いが、屋外曝露量との相関は $r=0.12\sim0.48$ と比較的低いという結果が得られた。これも、「母親」と「子供」の活動範囲が主に、家庭内と地域内(学校や勤務先を含む)であることに比べて、「父親」は家庭内にいる時間以外は、対象地域外にいる時間が長いということであろう。

以上より、「母親」と「子供」に関しては活動パターンが類似であり、曝露評価の際に同一のグループとして評価すること、また地域内の環境中濃度と自宅の室内濃度から曝露量の推定できる可能性が示唆された。しかしながら「父親」に関しては、室内曝露量との相関はあるものの、屋外曝露量とは相関が高くないために、「父親」の曝露量の推定のためには、通勤などの移動に伴う地域外での曝露の影響も考慮した手法で評価することが必要であると思われる。また、今回の調査では勤務先の曝露量は測定していないために評価できないが、勤務環境によっては職業曝露の影響があることも考えられる。職業曝露は一般生活における曝露量に比べ、非常に大きな曝露を受ける可能性がある。

また、屋外曝露量と室内曝露量との関係については、NO<sub>2</sub>

Table 4 Correlation coefficient (r) of each substance

NO <sub>2</sub> without Tsukuba area				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.465</b>	<b>0.319</b>	<i>0.129</i>	<b>0.516</b>
Mother		<b>0.663</b>	<b>0.378</b>	<b>0.668</b>
Child			<b>0.387</b>	<b>0.506</b>
Outdoor				<b>0.399</b>

NO <sub>2</sub> with all areas				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.406</b>	<b>0.271</b>	<i>-0.043</i>	<b>0.293</b>
Mother		<b>0.597</b>	<i>-0.329</i>	<b>0.557</b>
Child			<i>0.057</i>	<b>0.436</b>
Outdoor				<i>-0.262</i>

Benzene				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.497</b>	<b>0.442</b>	<b>0.279</b>	<b>0.593</b>
Mother		<b>0.676</b>	<b>0.604</b>	<b>0.643</b>
Child			<b>0.514</b>	<b>0.586</b>
Outdoor				<b>0.524</b>

Toluene				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.677</b>	<b>0.671</b>	<b>0.483</b>	<b>0.695</b>
Mother		<b>0.768</b>	<b>0.686</b>	<b>0.852</b>
Child			<b>0.675</b>	<b>0.789</b>
Outdoor				<b>0.672</b>

Ethyl benzene				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.288</b>	<b>0.439</b>	<i>0.219</i>	<b>0.401</b>
Mother		<b>0.647</b>	<b>0.673</b>	<b>0.771</b>
Child			<b>0.608</b>	<b>0.664</b>
Outdoor				<b>0.567</b>

m,p-xylene				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.327</b>	<b>0.494</b>	<b>0.291</b>	<b>0.402</b>
Mother		<b>0.705</b>	<b>0.627</b>	<b>0.808</b>
Child			<b>0.672</b>	<b>0.761</b>
Outdoor				<b>0.610</b>

o-xylene				
	Mother	Child	Outdoor	Living
Father	<b>0.409</b>	<b>0.529</b>	<b>0.343</b>	<b>0.459</b>
Mother		<b>0.776</b>	<b>0.610</b>	<b>0.846</b>
Child			<b>0.688</b>	<b>0.784</b>
Outdoor				<b>0.610</b>

note: Bold decimal indicates statistically significant ( $P < .05$ )

においては  $r=0.40$  と有意ではあるが比較的弱い正の相関、VOCs においては屋外曝露量と室内曝露量との間に中程度の相関関係 ( $r=0.52\sim 0.67$ ) が見られた。

屋外濃度が高い場合に室内濃度も相対的に高くなる理由として次のようなことが考えられる。一般的に、換気を行い外気を取り入れることによって、室内汚染物質の除去が期待できる。しかし、取り入れる外気の濃度が高ければ換気による効果は相対的に薄れてしまう。また、 $\text{NO}_2$  や VOCs の屋外濃度が高い地域は一般的に大気汚染の程度が大きい地域と考えられるので、汚染の程度が低い地域に比べて窓を開ける回数が減少している可能性がある。その結果、換気量自体が少なくなり、室内濃度を引き上げているということも考えられる。

## 5. 結論

5km 四方の地域内に住む人々に対する  $\text{NO}_2$  および VOCs の曝露量の個人差および曝露の特徴を検討する目的で、パッシブサンプラーを用いた曝露量調査を人口密度の異なる3地域に対して行った。その結果、以下の知見を得ることができた。

- (1) つくば地域の  $\text{NO}_2$  の室内汚染の影響が示された。これは、調査期間の気温が低かったために、暖房器具として石油ストーブを使う家庭が多く、石油ストーブから発生する  $\text{NO}_2$  が原因であると思われる。
- (2) VOCs の室内曝露量が屋外曝露量よりも高い傾向が見られ、室内汚染源の存在が示唆された。
- (3) 個人曝露量の幾何標準偏差の大きさについて、 $\text{NO}_2$  については1.2程度、VOCs については1.6～1.8程度になることが示された。この分散の大きさは、同じ地域内の属性間（父・母・子）では等しいと見せたが、地域間の同一属性に対する分散は  $\text{NO}_2$  とベンゼンに対してのみ等しいと見せた。
- (4) 曝露量の相関関係を調べることによって、「母親」と「子供」については、曝露の特性が類似しており同一のグループとして評価できることが示唆された。また「母親」と「子供」は、個人曝露量と室内曝露量・屋外曝露量の間有意な正の相関が見られた。
- (5) 「父親」に関しては、「母親」・「子供」のどちらとも相関が弱く、曝露の特性がことなることが示された。また、室内曝露量とは適度な相関が得られたが、屋外曝露量との相関が弱いことから、「母親」・「子供」と異なり自宅の室内以外では地域内にいる時間が短く、その代わり地域外（勤務先など）での活動時間が多いことが原因として考えられた。
- (6) 屋外曝露量と室内曝露量の関係は、 $\text{NO}_2$  と VOCs の全ての物質において有意な正の相関関係が見られた。

本研究においては、行動パターンの違うと思われる集団の個人曝露量の特性について検討を行った。今後は、実際の行動に関する調査なども行うことによって、行動パターンの異なる集団に対する曝露量推定のモデル化の試みが必要になってくると思われる。最終的には、大気汚染物質の排出源と個人曝露量との間の関係を明らかにすることによって排出源管理に合理的根拠を与えることが期待される。

## 謝辞

上野地域・柏地域・つくば地域において、本調査のサンプリングにご協力頂きましたご家族のみなさまに心より感謝いたします。また、本調査の発送作業などを手伝って下さいました資源環境技術研究所の篠塚るり様にも感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 松本幸雄ら：稠密調査による  $\text{NO}_2$  濃度の時間空間変動と空間分布構造の安定性 ―東京都の市部を中心

- とした約 20km 四方の領域内の変動一、大気汚染学会誌、26(3)、136-151、1991
- 2) 松本幸雄ら：幹線道路を含む領域における二酸化窒素濃度の変動構造 一東京都世田谷区役所周辺における 1989 年 3 月の調査一、大気汚染学会誌、29(2)、41-54、1994
  - 3) 新藤純子ら：NO<sub>2</sub> 濃度の空間分布構造の安定性 一簡易測定による稠密調査結果の統計解析一、大気汚染学会誌、22(2)、127-136、1987
  - 4) 新藤純子ら：大気汚染の時間・空間的変動特性に基づく観測系設計の考え方、環境科学会誌、8(3)、243-260、1995
  - 5) Ole Raaschou-Nielsen et al.: Ambient Air Levels and Exposure of Children to Benzene, Toluene, and Xylenes in Denmark, Environmental Research, 75, 149-159, 1997
  - 6) Ole Raaschou-Nielsen et al.: Front-door Concentration and Personal Exposures of Danish Children to Nitrogen Dioxide, Environmental Health Perspectivte, 105(9), 964-970, 1997
  - 7) 高橋ゆかりら：蒸気状及び粒子状多環芳香族炭化水素による室内及び大気環境の汚染状況 一静岡市及び清水市における調査結果、環境化学、8(1)、71-87、1998
  - 8) 烏蘭参丹ら：揮発性有機ハロゲン化合物への曝露実態に係る調査研究 一静岡市における個人曝露、大気および室内濃度一、環境化学、8(1)、47-62、1998
  - 9) 吉田俊明ら：住居環境における揮発性有機塩素系化合物への曝露実態とその体内吸収量の推定、大気環境学会誌、33(6)、371-383、1998
  - 10) 柳沢幸雄ら：生活環境濃度測定用 NO<sub>2</sub> パーソナル・サンプラー、大気汚染学会誌、15(8)、316-323、1980
  - 11) 東洋濾紙株式会社：フィルターバッジ NO<sub>2</sub> 取扱説明書
  - 12) 大野浩一ら：大気汚染物質の曝露量評価におけるバッシブサンプリング法の有効性の検討、第 35 回環境工学研究フォーラム講演集、71-73、1998
  - 13) 田辺新一：室内化学汚染、講談社現代新書、1998
  - 14) 池田耕一：室内空気汚染のメカニズム、鹿島出版会、1992
  - 15) 吉村功：毒性・薬効データの統計解析 一事例研究によるアプローチ、サイエンティスト社、1987